

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of:

DON-YOUNG KIM, ET AL.

Application No.:

Filed:

For: **YIG Magnetic Ceramic Composition
For Microwave Application and
Preparation Method Thereof**

Art Group:

Examiner:

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

REQUEST FOR PRIORITY

Sir:

Applicant respectfully requests a convention priority for the above-captioned application, namely:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>DATE OF FILING</u>
Korea	10-2002-0071556	18 November 2002

☒ A certified copy of the document is being submitted herewith.

Respectfully submitted,

Blakely, Sokoloff, Taylor & Zafman LLP

Dated: _____

11/19/03


Eric S. Hyman, Reg. No. 30,139



별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto is a true copy from the records of the Korean Intellectual Property Office.

출원 번호 : 10-2002-0071556
Application Number

출원 년 월 일 : 2002년 11월 18일
Date of Application NOV 18, 2002

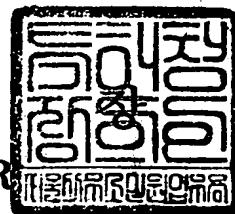
출원인 : 한국전자통신연구원 외 1명
Applicant(s) Electronics and Telecommunications Research Institute



2003 년 06 월 27 일

특 허 청

COMMISSIONER





【서지사항】

【서류명】	특허출원서
【권리구분】	특허
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2002.11.18
【발명의 명칭】	마이크로파용 Y I G 자성체 세라믹 조성물 및 그의 제조 방법
【발명의 영문명칭】	MAGNETIC CERAMIC COMPOSITION OF YIG FOR MICROWAVE APPLICATION AND THE PREPARATION OF THE SAME
【출원인】	
【명칭】	한국전자통신연구원
【출원인코드】	3-1998-007763-8
【출원인】	
【명칭】	주식회사 이지
【출원인코드】	1-1998-001834-3
【대리인】	
【명칭】	특허법인 신성
【대리인코드】	9-2000-100004-8
【지정된변리사】	변리사 정지원, 변리사 원석희, 변리사 박해천
【포괄위임등록번호】	2000-051975-8
【발명자】	
【성명의 국문표기】	김동영
【성명의 영문표기】	KIM,Dong Young
【주민등록번호】	671225-1047129
【우편번호】	305-761
【주소】	대전광역시 유성구 전민동 엑스포아파트 106-1403
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	한진우
【성명의 영문표기】	HAHN,Jin Woo
【주민등록번호】	630320-1037325
【우편번호】	305-761
【주소】	대전광역시 유성구 전민동 엑스포아파트 105-1005
【국적】	KR



【발명자】

【성명의 국문표기】

전동석

【성명의 영문표기】

JUN, Dong Suk

【주민등록번호】

610525-1683429

【우편번호】

305-727

【주소】

대전광역시 유성구 전민동 삼성푸른아파트 105-503

【국적】

KR

【발명자】

【성명의 국문표기】

이상석

【성명의 영문표기】

LEE, Sang Seok

【주민등록번호】

551104-1357137

【우편번호】

305-755

【주소】

대전광역시 유성구 어은동 한빛아파트 131-403

【국적】

KR

【심사청구】

청구

【취지】

특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사를 청구합니다. 대리인
특허법인 신성 (인)

【수수료】

【기본출원료】

14 면 29,000 원

【가산출원료】

0 면 0 원

【우선권주장료】

0 건 0 원

【심사청구료】

4 항 237,000 원

【합계】

266,000 원

【감면사유】

정부출연연구기관

【감면후 수수료】

133,000 원

【기술이전】

【기술양도】

희망

【실시권 허여】

희망

【기술지도】

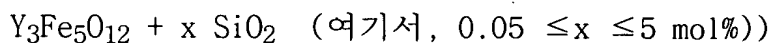
희망

【첨부서류】

1. 요약서·명세서(도면)_1통 2. 중소기업기본법시행령 제2조에 의한 중소기업에 해당함을 증명하는 서류_1통 3. 위임장_1통

【요약서】**【요약】**

본 발명은 고밀도의 마이크로파용 자성체 세라믹 조성물과 그 제조방법에 관한 것으로, 본 발명에 따른 자성체 세라믹 조성물은 이트륨 철 가네트($Y_3Fe_5O_{12}$)를 주성분으로 하고, 여기에 소량의 실리카(SiO_2)가 부성분으로 첨가된 조성으로 이루어져 있으며, 하기와 같은 조성식으로 표현된다.



또한 본 발명은 산화이트륨(Y_2O_3), 산화철(Fe_2O_3) 및 실리카(SiO_2)를 각각 칭량하여 혼합하고 하소단계를 거쳐 성형과 소결공정을 포함하여 이루어지는 자성체 세라믹 조성물의 제조방법을 제공한다. 본 발명에 따르면, 본 발명에 따른 자성체 세라믹 조성물은 매우 작은 값의 자성손실을 가지므로 마이크로파 대역에서 사용할 수 있는 통신부품용 세라믹 자성체 소재로 유용하게 사용할 수 있다.

【대표도】

도 1

【색인어】

이트륨 철 가네트, 자성체 세라믹 조성물, 마이크로파, 소결밀도, 자성손실

【명세서】**【발명의 명칭】**

마이크로파용 Y I G 자성체 세라믹 조성물 및 그의 제조방법 {MAGNETIC CERAMIC COMPOSITION OF YIG FOR MICROWAVE APPLICATION AND THE PREPARATION OF THE SAME}

【도면의 간단한 설명】

도 1은 본 발명에 따른 $Y_3Fe_5O_{12}$ 조성물의 소결 온도에 따른 소결 밀도를 나타낸 그래프.

도 2는 본 발명에 따른 $Y_3Fe_5O_{12}$ 조성물의 소결온도에 따른 강자성 공명 선폭을 나타낸 그래프.

【발명의 상세한 설명】**【발명의 목적】****【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】**

<3> 본 발명은 마이크로파 대역용 써큘레이터(circulator), 아이솔레이터(isolator) 등의 부품에 사용할 수 있는 자성체 세라믹 소재에 관한 것으로서, 높은 소결밀도와 작은 자성손실을 가지는 $Y_3Fe_5O_{12}$ 계 자성체 세라믹 조성물과 그 제조방법에 관한 것이다.

<4> 최근의 통신기술의 급격한 발달과 더불어 개인용 휴대전화, 위성통신 등의 통신수단이 급격하게 보급됨에 따라서 무선통신부품의 수요도 크게 증가하고 있다. 이러한 경향에 따라서 자성체 세라믹이 써큘레이터, 아이솔레이터, S/N 증대기(enhancer) 등의 마이크

로파 통신부품에 널리 사용되고 있다. YIG($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$), Ni-Zn 페라이트, Mn-Zn 페라이트, Li 페라이트 등의 자성체 세라믹이 이러한 용도로 널리 이용되고 있다.

<5> 한편 이러한 자성체 세라믹이 써큘레이터, 아이솔레이터 등의 마이크로파용 부품에 응용되기 위해서는 포화 자화값이 100 ~ 1800G의 범위에서 조절이 가능해야 하고, 또한 자성체의 자성 손실을 나타내는 강자성 공명선폭이 60 Oe 이하의 작은 값을 가지는 재료를 선택하는 것이 필수적이다. 특히 자성체의 자성 손실은 마이크로파 응용부품의 삽입손실을 결정하는 가장 중요한 요소이므로 손실이 적은 부품을 제조하기 위해서는 되도록 자성손실이 작은 재료를 제조하여야 한다.

<6> 일반적으로 마이크로파 대역에서 사용되는 자성체 중에서 YIG계열의 자성체는 부조성의 첨가에 의해서 포화 자화값의 조절이 용이하고 자성손실이 지금까지 알려진 자성체 중에서 가장 작은 것으로 알려져 있다.

<7> 한편, 자성체의 자성손실을 나타내는 강자성 공명선폭은 다음과 같은 식으로 표시된다.

$$\Delta H = \Delta H_{KL} + \Delta H_{imp} + \Delta H_{def}$$

<9> 여기에서, ΔH 는 시편의 강자성 공명선폭을 나타내고, ΔH_{KL} 은 Kasuya-Le Craw 프로세스에 의해서 발생하는 재료가 가지는 고유한 완화(relaxation)값을 나타내고, ΔH_{imp} 는 불순물 특히 원자가가 2가나 4가를 가지는 불순물에 의해서 발생하는 완화값을 나타낸다. 또한 ΔH_{def} 는 재료의 내부나 표면에 존재하는 결함 등의 자기적으로 불균일한 영역에 의해서 발생하는 자기적 산란을 의미한다.

<10> 지금까지 저손실의 자성체를 만드는 방법으로는 Ca, V 등의 첨가물을 첨가하여 자성체가 가지는 자기 이방성을 줄여서 ΔH_{KL} 를 감소시키는 방법, 고밀도의 소결체를 제조하여 기

공 등의 결함농도를 줄여서 ΔH_{def} 를 감소시키는 방법 등이 알려져 있다. 고밀도의 YIG 소결체를 제조하는 방법으로는 고온가압(Hot Pressing) 소성법을 이용하여 고온 고압 하에서 소결을 함으로써 소결체의 밀도를 증가시키는 방법이 사용되고 있으나 고가의 장비를 필요로 하는 단점을 가진다.

【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

<11> 본 발명은 마이크로파 대역에서 사용할 수 있는 저 자성손실의 고밀도 자성체 세라믹 조성물과 그의 제조방법을 제공하는 데에 목적이 있다.

【발명의 구성 및 작용】

<12> 상기와 같은 기술적 과제를 달성하기 위하여 본 발명자들이 예의 연구를 거듭한 결과, 이트륨 철 가네트($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$)를 기본조성으로 하고 여기에 소량의 SiO_2 를 소결조제로 첨가하여 소결특성 및 자성특성을 향상시킬 수 있다는 것을 알게 되어 본 발명을 완성하게 되었다.

<13> YIG는 매우 작은 자성손실을 가지는 자성체로 단결정의 경우 자성손실을 나타내는 강자성공명선폭이 0.5 Oe이하로 알려져 있다. 그러나 소결체의 경우에는 내부에 존재하는 입계나 기공 등의 결함에 의해서 자성손실이 증가한다. 따라서 소결체의 소결밀도를 높여서 이러한 결함의 농도를 줄이기 위한 연구가 널리 진행되어 왔다. 고밀도의 YIG소결체를 제조하기 위해서 종래에는 고온가압(Hot Pressing) 소성법을 이용하여 고온 고압하에서 소결을 수행하여 소결체의 밀도를 증가시키는 방법이 사용되고 있다. 그러나 이 방법

은 고가의 장비를 필요로 하며, 대량생산을 할 수 없다는 단점을 갖고 있었는 바, 본 발명은 이러한 문제점에 대한 대안을 제시한다.

<14> 본 발명에서는 소결체의 소결온도를 낮추고 기공 등의 결함을 쉽게 제거하여 고밀도의 소결체를 제조할 수 있는 소결조제를 찾아내었으며, 그 결과로부터 마이크로파 대역에서 작은 자성손실을 가지는 YIG계 자성체 세라믹 조성물을 개발하였고 이런 자성특성을 재현적으로 얻을 수 있는 제조공정의 공정변수를 제공하는 것이다.

<15> 본 발명은 이트륨 철 가네트($Y_3Fe_5O_{12}$)를 주조성으로 하고 여기에 SiO_2 를 부조성으로 소량 첨가하여 얻은 새로운 조성의 마이크로파용 자성체 세라믹 조성물을 제공한다. 또한 이 소재의 자성특성이 재현성 있게 얻어질 수 있는 각 제조공정 단계에서의 최적 공정 변수 및 제조 방법을 제공한다.

<16> 상기한 바와 같이 종래에 보고된 고밀도의 YIG 자성체를 제조하는 방법은 고온 가압(Hot Pressing) 소성법이 가장 우수한 특성을 보여준다. 이는 고온 고압 하에서 소결을 함으로써 내부의 기공과 같은 결함을 손쉽게 밖으로 배출하여 고밀도의 소결체를 제조하기 때문이다. 실제로 $1380^{\circ}C$ 에서 $200kg/cm^2$ 의 압력을 가하면서 소결한 시편의 소결밀도는 $5.14 g/cm^3$ 로 이론 밀도의 99%이상의 값을 갖는다고 알려져 있다. 그러나 이 방법은 고가의 장비를 필요로 하고, 또한 대량생산을 할 수 없다는 단점을 가져서 실제 제품생산에 응용되기는 힘든 실정이다.

- <17> 본 발명에서는 산화철(Fe_2O_3)과 산화 이트륨(Y_2O_3)을 출발 원료로 하여 YIG($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$)를 합성하고 여기에 소량의 실리카(SiO_2)를 부조성으로 첨가하여 소결특성과 자성특성을 향상시킨 마이크로파용 자성체 세라믹 소재를 개발하였다.
- <18> 본 발명에 따른 마이크로파 대역에서 사용가능한 자성체 세라믹 조성물은 이트륨 철 가네트($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) 95 내지 99.95 몰%; 및 실리카(SiO_2) 0.05 내지 5 몰%를 포함하여 이루어져, 하기와 같은 조성을 갖는다.
- <19> 조성식: $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12} + x \text{SiO}_2$ (여기서, $0.05 \leq x \leq 5 \text{ mol\%}$)
- <20> 실리카의 양이 0.05 몰%이하인 경우, 소결조제로서의 별 효과가 없으며, 5 몰%를 초과하는 경우에는 첨가되는 SiO_2 가 불순물로 박용하여 자성손실이 증가한다.
- <21> 주조성인 YIG($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$)를 제조하기 위해서는 산화철(Fe_2O_3)과 산화 이트륨(Y_2O_3)을 5:3의 몰비로 혼합하여 고온에서의 고상반응을 통한 상합성이 필요한 바, 이러한 상합성을 위하여 본 발명에 따른 제조 방법에서는 상기 조성물을 제조하기 위하여 1100~1300℃의 온도에서 약 5-7시간의 열처리를 행하는 하소 단계가 포함되어 있으며, 이러한 과정을 위하여 상합성이 가능하게 된다.
- <22> 이런 하소 공정을 거쳐 얻은 YIG ($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) 상의 분말에 소결을 촉진시키는 부성분으로 소량의 실리카(SiO_2)를 첨가하여 다시 혼합하고, 성형 단계를 거쳐서 약 1250~1450℃의 온도에서 소결하여 마이크로파용 자성체 세라믹 조성물을 얻을 수 있다.
- <23> 이하, 다음의 바람직한 실시예 및 비교실시예를 통하여 본 발명의 내용을 구체적으로 설명하고자 한다. 본 발명은 하기 실시예에 의하여 그 범위가 제한되는 것은 아니다.

<24> 비교실시예 1~4

<25> 산화철(Fe_2O_3)과 산화 이트륨(Y_2O_3) 분말을 출발원료로 선택하여 이들을 5:3의 몰비에 맞도록 칭량한 후, 약 20시간 동안 습식으로 혼합하였다. 혼합물을 건조하여 혼합 분말을 수득한 후, 1200°C 의 온도에서 6시간 동안 하소하여 YIG($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) 상을 만들었다. 얻어진 분말에 대한 XRD 분석 결과로부터 하소공정을 통해 얻은 분말은 모두 YIG($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) 상임을 확인할 수 있었다. 얻어진 분말을 다시 20시간 동안 습식 혼합을 행한 후, 건조 과정을 거쳐서 얻은 혼합 분말을 100번 체로 체거름하여 실리카(SiO_2)가 첨가되지 않은 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 분말을 제조하였다.

<26> 수득된 상기 조성의 분말을 지름 15mm의 원통형 금형에 넣어서 약 $1500\text{kg}/\text{cm}^2$ 의 압력으로 성형하고, 1300°C , 1350°C , 1400°C 및 1450°C 의 온도에서 각각 4시간씩 소결하여 자성체 시편을 제조하였다. 얻어진 자성체 시편에 대해서 아르키메데스 방법으로 구한 소결밀도와 시편을 직경 0.5mm의 구형으로 가공하여 강자성공명 측정장치를 이용하여 자성체 자성손실을 나타내는 강자성 공명선폭을 구하여 하기 표 1에 나타내었다.

<27> 실시예 1~12

<28> 산화철(Fe_2O_3)과 산화 이트륨(Y_2O_3) 분말을 출발원료로 선택하여 이들을 5:3의 몰비에 맞도록 칭량한 후, 약 20시간 동안 습식으로 혼합하였다. 혼합물을 건조하여 혼합 분말을 수득한 후, 1200°C 의 온도에서 6시간 동안 하소하여 YIG($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) 상을 만들었다. 얻어진 분말에 대한 XRD 분석 결과로부터 하소 공정을 통해 얻은 분말은 모두 YIG($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) 상임을 확인할 수 있었다. 여기에 실리카(SiO_2)를 5 mol% 이하의 범위로

하기 표 2에서와 같은 몰비로 첨가하여 다시 20시간 동안 습식 혼합을 행한 후, 건조 과정을 거쳐서 얻은 혼합 분말을 100번 체로 체거름하여 본 발명에 따른 하기 조성에 따른 조성물을 제조하였다.

<29> $Y_3Fe_5O_{12} + x SiO_2$ (여기서, $0.05 \leq x \leq 5 \text{ mol\%}$)

<30> 수득된 상기 조성의 분말을 지름 15mm의 원통형 금형에 넣어서 약 1500kg/cm^2 의 압력으로 성형하고, $1300\sim 1450^\circ\text{C}$ 의 온도범위에서 각 4시간씩 소결하여 자성체 시편을 제조하였다. 얻어진 자성체 시편에 대해서 아르키메데스 방법으로 구한 소결밀도와 시편을 직경 0.5mm의 구형으로 가공하여 강자성공명 측정장치를 이용하여 자성체 자성손실을 나타내는 강자성 공명선폭을 구하여 하기 표 1에 나타내었다.

<31> 【표 1】

$Y_3Fe_5O_{12} + x SiO_2$ 자성체 세라믹의 소결밀도 및 강자성 공명선폭

	x	소결온도	소결밀도	강자성공명선폭
비교실시예1	0	1300℃	4.73	
비교실시예2		1350℃	4.89	
비교실시예3		1400℃	5.08	110
비교실시예4		1450℃	5.03	102
실시예1	0.5	1300℃	5.14	54
실시예2		1350℃	5.15	48
실시예3		1400℃	5.13	60
실시예4		1450℃	5.09	61
실시예5	1	1300℃	5.05	67
실시예6		1350℃	5.15	47
실시예7		1400℃	5.14	50
실시예8		1450℃	5.10	57
실시예9	5	1300℃	4.93	83
실시예10		1350℃	5.12	64
실시예11		1400℃	5.12	58
실시예12		1450℃	5.04	71

<32> 상기 표 1에서 볼 수 있듯이 실리카(SiO_2)를 첨가하지 않은 비교실시예 1~4의 경우에는 소결밀도와 강자성공명선폭 모두가 매우 저조한 값을 나타내지만, 본

발명에 따라 적정량의 실리카(SiO_2)를 첨가한 실시예1~12의 경우에는 하면 이론밀도의 99.5%이상의 소결밀도와 50 Oe이하의 강자성공명선폭을 가지는 이트륨 철

가네트($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$)계의 마이크로파용 자성체 세라믹 조성물을 약 1300°C ~ 1350°C 정도의 소결온도에서 얻을 수 있음을 확인하였다. 자성특성과 소결밀도의 측면에서 볼 때 실리카의 가장 바람직한 첨가량은 0.5~1.0 mol% 이며, 가장 바람직한 소결온도는 $1300 \sim 1350^\circ\text{C}$ 임을 알 수 있다.

<33> 본 발명에 따른 조성물에 따르면, 실리카(SiO_2)의 첨가에 의해 적정 소결온도를 100°C 이상 낮출 수 있으며, 얻어진 소결체의 소결 밀도도 $5.08\text{g}/\text{cm}^3$ 에서 $5.15\text{g}/\text{cm}^3$ 로 증가하였음을 확인할 수 있다. 자성체의 자성손실을 나타내는 강자성공명선폭은 47 Oe정도로 실리카(SiO_2)를 첨가하지 않은 경우에 비해 반 이하로 작은 우수한 자성체를 제조할 수 있었다.

【발명의 효과】

<34> 상기한 바와 같이 본 발명의 이트륨 철 가네트($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$)계 소재에 0.5 ~ 1.0 mol%의 실리카(SiO_2)가 첨가된 새로운 조성의 자성체 세라믹 조성물 및 그 제조방법에 따르면, 적정 소결온도가 낮고, 소결밀도가 크며, 자성손실이 작은 우수한 자성체 조성물을 얻을 수 있다. 또한 이러한 조성물을 이용하여 마이크로파 주파수 대역에서 활용이 가능한 통신용 비가역 수동부품, 즉 써큘레이터, 아이솔레이터 등의 부품을 제조할 수 있다.

【특허청구범위】**【청구항 1】**

이트륨 철 가네트($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) 95 내지 99.95 몰%; 및
실리카(SiO_2) 0.05 내지 5 몰%를 포함하여 이루어진 마이크로파용 자성체 세라믹
조성물.

【청구항 2】

산화철(Fe_2O_3)과 산화 이트륨(Y_2O_3)을 5:3의 몰비로 혼합하여 하소하는 단계;
상기 하소물에 0.05 ~ 5 몰%의 실리카를 첨가하여 혼합하는 단계; 및
상기 혼합물을 성형 및 소결하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는
 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12} + x \text{SiO}_2$ (여기서, $0.05 \leq x \leq 5 \text{ mol\%}$)조성을 갖는 마이크로파용 자성체 세라믹
조성물의 제조 방법.

【청구항 3】

제2항에 있어서,
상기 하소 단계는 1150℃ 내지 1250℃의 온도에서 5 내지 7시간 동안 진행하는 것
을 특징으로 하는
마이크로파용 자성체 세라믹 조성물의 제조 방법

【청구항 4】

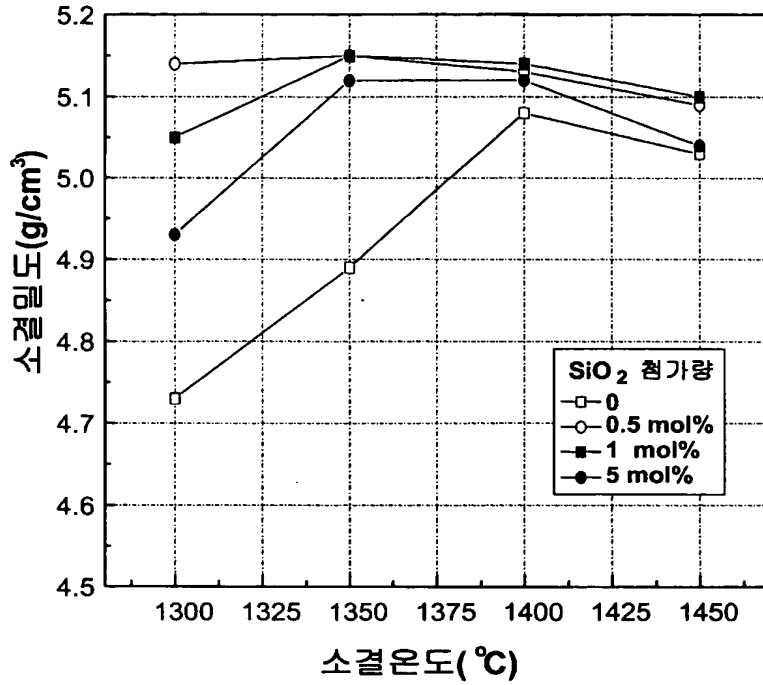
제2항에 있어서,

상기 소결 단계는 1300℃ 내지 1450℃의 온도에서 3시간 내지 5시간 동안 행하는
것을 특징으로 하는

마이크로파용 자성체 세라믹 조성물의 제조 방법

【도면】

【도 1】



【도 2】

